

Stacked electrochemical cell and method for preparing same**Patent number:** CN1363121**Publication date:** 2002-08-07**Inventor:** HYONG-MOK LEE (KR); SOON-HO AHN (KR); KYUNG-JOON KIM (KR)**Applicant:** LG CHEMICAL LTD (KR)**Classification:****- International:** H01M10/38**- european:****Application number:** CN20010800203 20010208**Priority number(s):** KR20000005849 20000208; KR20010005861 20010207**Also published as:**

WO0159868 (A1)

EP1177591 (A1)

US6709785 (B2)

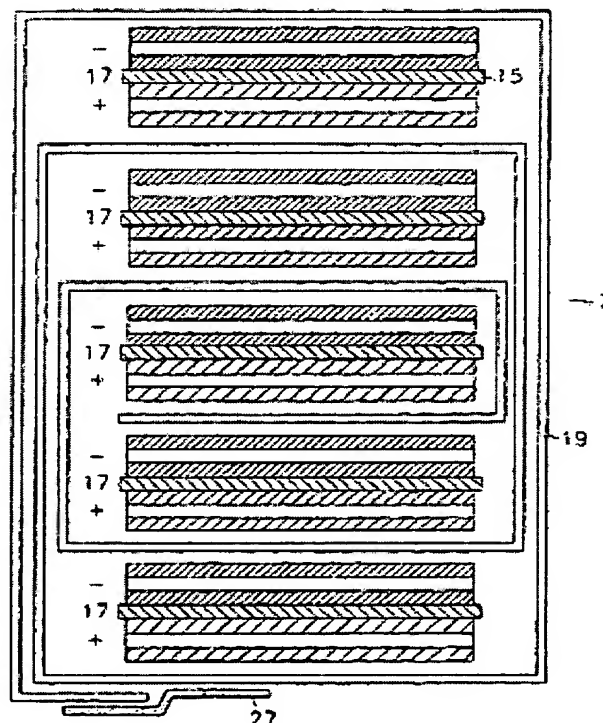
US2002160257 (A)

Report a data error he

Abstract not available for CN1363121

Abstract of corresponding document: **US2002160257**

The present invention relates to an electrochemical element, specifically an electrochemical element with improved energy density comprising multiply stacked electrochemical cells. In order to achieve such objects, the present invention provides an electrochemical element comprising electrochemical cells which are multiply stacked, said electrochemical cells formed by stacking full cells having a cathode, a separator layer, and an anode sequentially as a basic unit, and a separator film interposed between each stacked full cell wherein, said separator film has a unit length which is determined to wrap the electrochemical cells and folds inward every unit length to wrap each electrochemical cell starting from the center electrochemical cell to the outermost electrochemical cell continuously.

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide

THIS PAGE BLANK (USPTO)

[12] 发明专利申请公开说明书

[21] 申请号 01800203.X

[43] 公开日 2002 年 8 月 7 日

[11] 公开号 CN 1363121A

[22] 申请日 2001.2.8 [21] 申请号 01800203.X

[30] 优先权

[32] 2000.2.8 [33] KR [31] 5849/2000

[32] 2001.2.7 [33] KR [31] 5861/2001

[86] 国际申请 PCT/KR01/00187 2001.2.8

[87] 国际公布 WO01/59868 英 2001.8.16

[85] 进入国家阶段日期 2001.10.11

[71] 申请人 LG 化学株式会社

地址 韩国汉城

[72] 发明人 李香穆 安淳昊 金璟俊

李在宪

[74] 专利代理机构 中科专利商标代理有限责任公司

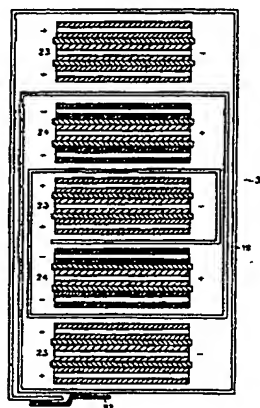
代理人 胡文宇

权利要求书 4 页 说明书 13 页 附图页数 9 页

[54] 发明名称 堆叠的电化学电池及其制备方法

[57] 摘要

本发明涉及电化学元件,特别是具有改良的能量密度的包括多层堆叠的电化学电池的电化学元件。为实现这样的目的,本发明提供一种电化学元件,包括多层堆叠的电化学电池,所述的电化学电池是通过堆叠作为基本单位的依次具有阴极,隔离层,和阳极的全电池和置于各堆叠的全电池之间的隔离膜而形成,其中所述隔离膜具有能够包覆电化学电池的单位长度,并从中间的电化学电池开始,向内折叠每个单位长度以包覆各电化学电池,连续地直至最外边的电化学电池。



权 利 要 求 书

1. 一种电化学元件，包括多层堆叠的电化学电池，所述电化学电
池是通过堆叠作为基本单位的依次具有阴极，隔离层，和阳极的全电池，
和置于每个堆叠的全电池间的隔离膜而形成，其中：

所述隔离膜具有能够包覆电化学电池的单位长度，并从中间的电化
学电池开始，向内折叠每个单位长度以包覆各电化学电池，连续地直至
最外边的电化学电池。

2. 根据权利要求 1 的电化学元件，其中所述隔离膜的最外端用胶
带固定。

3. 根据权利要求 1 的电化学元件，其中所述隔离膜的最外端用热
封固定。

4. 根据权利要求 1 的电化学元件，其中所述隔离膜选自微孔聚乙
烯薄膜，微孔聚丙烯薄膜，由其组合制备的多层薄膜，和用作聚合物电
解质的聚合物薄膜，所述聚合物包括聚（1,1-二氟乙烯），聚环氧乙烷，
聚丙烯腈，或聚（1,1-二氟乙烯-六氟丙烯）共聚物。

5. 根据权利要求 4 的电化学元件，其中所述用作聚合物电解质的
聚合物薄膜包括第一微孔聚合物层和聚（1,1-二氟乙烯-一氯三氟乙烯）
共聚物的第二凝胶聚合物层。

6. 根据权利要求 1 的电化学元件，其中所述全电池的各阴极是阴
极材料涂布在阴极集电器两侧的电极，而所述各阳极是阳极材料涂布在
阳极集电器两侧的电极。

7. 根据权利要求 1 的电化学元件，其中放置在所述电化学电池最
外侧的各全电池，包括一个阴极材料涂布在阴极集电器单侧的阴极，或
一个阳极材料涂布在阳极集电器单侧的阳极，并且集电器金属箔放置在
最外侧。

8. 一种制备包括多层堆叠的电化学电池的电化学元件的方法，所
述电化学电池是通过堆叠作为基本单位的依次具有阴极，隔离层，和阳
极的全电池和隔离膜而形成，所述隔离膜具有能够包覆电化学电池的单

位长度，并从中间的电化学电池开始，向内折叠每个单位长度以包覆各电化学电池，连续地直至最外边的电化学电池，所述隔离膜置于各堆叠的全电池之间，该方法包括如下步骤：

5 a) 在隔离膜一侧的第一点放置第一个全电池，在该隔离膜的纵向相当于该全电池宽度加厚度的距离处放置第二个全电池，并在相当于全电池的厚度加上随薄膜折叠而增加的膜厚度的距离处，放置第三个全电池及下一个全电池；

b) 层压 a) 步的放置好的全电池和隔离膜；和

10 c) 向紧邻第一个全电池的全电池，折叠并向内卷起 b) 步的层压好的全电池和隔离膜，使每个全电池都折叠起来，从而堆叠起全电池。

9. 根据权利要求 8 的方法，还包括步骤 d)：用胶带固定所述隔离膜的末端。

15 10. 根据权利要求 8 的方法，还包括步骤 e)：用热封方法固定所述隔离膜的末端，所述热封是通过使热封机，或热板与隔离膜接触来进行的。

11. 根据权利要求 8 的方法，其中 a) 步的全电池放置在隔离膜的上面或下面。

12. 一种电化学元件，包括多层堆叠的电化学电池，所述电化学电池通过堆叠：

20 i) 作为基本单元的一种依次具有阴极，隔离层，阳极，另一个隔离层，和另一个阴极的双电池；和

ii) 作为基本单元的一种依次具有阳极，隔离层，阴极，另一个隔离层，和另一个阳极的双电池；

和置于每个堆叠的双电池间的隔离膜而形成，其中：

25 所述隔离膜具有能够包覆电化学电池的单位长度，并从中间的电化学电池开始，向内折叠每个单位长度以包覆各电化学电池，连续地直至最外边的电化学电池。

13. 根据权利要求 12 的电化学元件，其中所述隔离膜的最外端用胶带固定。

30 14. 根据权利要求 12 的电化学元件，其中所述隔离膜的最外端用

热封方法固定。

15. 根据权利要求 12 的电化学元件，其中所述隔离膜选自微孔聚乙烯薄膜，微孔聚丙烯薄膜，或由其组合制备的多层薄膜，和用作聚合物电解质的聚合物薄膜，所述聚合物包括聚（1,1-二氟乙烯），聚环氧乙烷，聚丙烯腈，或聚（1,1-二氟乙烯-六氟丙烯）共聚物。

16. 根据权利要求 15 的电化学元件，其中所述用作聚合物电解质的聚合物薄膜包括第一微孔聚合物层和聚（1,1-二氟乙烯-一氯三氟乙烯）共聚物的第二凝胶聚合物层。

17. 根据权利要求 12 的电化学元件，其中所述电化学电池是通过交替堆叠 i) 依次具有阴极，隔离层，阳极，另一个隔离层，和另一个阴极的双电池；和 ii) 依次具有阳极，隔离层，阴极，另一个隔离层，和另一个阳极的双电池而形成。

18. 根据权利要求 12 的电化学元件，其中双电池的各阴极是阴极材料涂布在阴极集电器两侧的电极，而各阳极是阳极材料涂布在阳极集电器两侧的电极。

19. 根据权利要求 12 的电化学元件，其中放置在所述电化学电池最外侧的各双电池，包括一个阴极材料涂布在阴极集电器单侧的阴极，或一个阳极材料涂布在阳极集电器单侧的阳极，并且集电器金属箔放置在最外侧。

20. 一种制备包括多层堆叠的电化学电池的电化学元件的方法，所述电化学电池是通过堆叠 i) 作为基本单元的依次具有阴极，隔离层，阳极，另一个隔离层，和另一个阴极的双电池；和 ii) 作为基本单元的依次具有阳极，隔离层，阴极，另一个隔离层，和另一个阳极的双电池；和隔离膜而形成，该隔离膜具有能够包覆电化学电池的单位长度，并从中间的电化学电池开始，向内折叠每个单位长度以包覆各电化学电池，连续地直至最外边的电化学电池，所述隔离膜置于各堆叠的双电池之间，该方法包括如下步骤：

a) 在隔离膜的第一点放置第一个双电池，在该隔离膜的纵向相当于该双电池宽度加厚度的距离处放置第二个双电池，并在相当于双电池的厚度加上随薄膜折叠而增加的膜厚度的距离处，放置第三个

双电池及下一个双电池；

b) 层压 a) 步的放置好的双电池和隔离膜；和

c) 向紧邻第一个双电池的双电池，折叠并向内卷起 b) 步的层压好的双电池和隔离膜，使每个双电池都折叠起来，从而堆叠起双电池。

5 21. 根据权利要求 20 的方法，还包括步骤 d)：用胶带固定所述隔离膜的末端。

22. 根据权利要求 20 的方法，还包括步骤 e)：用热封方法固定所述隔离膜的末端，所述热封是通过使热封机，或热板与隔离膜接触来进行的。

10 23. 根据权利要求 20 的方法，其中 a) 步的双电池放置在隔离膜的上面或下面。

24. 根据权利要求 20 的方法，其中所述电化学电池是通过交替堆叠 i) 依次具有阴极，隔离层，阳极，另一个隔离层，和另一个阴极的双电池；和 ii) 依次具有阳极，隔离层，阴极，另一个隔离层，和另一个阳极的双电池而形成。

15

堆叠的电化学电池及其制备方法

5

发明背景

(a) 发明领域

本发明涉及电化学元件及其制备方法，特别是具有改良的能量密度的包括多层堆叠的电化学电池的电化学元件及其制备方法。

10

(b) 相关技术描述

15

人们对能量储藏技术的兴趣越来越大。随着近来将电载体加入到便携式电话，便携式摄像机和笔记本电脑中，蓄电池的应用领域已扩展至这一系列产品中。这种扩展导致对具有可观输出量的蓄电池的研究和开发工作的增加。在这方面，对电化学元件的研究是引起很多关注的领域之一，其中可再充电蓄电池是最令人感兴趣的。最近的开发工作已转入设计新的蓄电池和电极以提高容量和单位能。

20

在已经应用的二次蓄电池中，开发于 1990 年代的锂离子蓄电池越来越普及，因为与使用水溶液电解质的 Ni-MH，Ni-Cd 和硫酸-铅蓄电池相比，其具有更高的工作电压和能量密度。但是，这些锂离子蓄电池具有由于使用有机电解质而产生的安全问题，该有机电解质使蓄电池可燃和爆炸。还有，锂离子具有难以制造加工的缺点。最近的锂离子聚合物蓄电池克服了锂离子蓄电池的这些缺点，并有望成为下一代蓄电池。但是，这些锂离子聚合物蓄电池与锂离子蓄电池相比，具有相当低的容量，并且在低温下的具有特别不足的放电容量；因此需要对其加以改进。

25

30

蓄电池的容量与电极活性物质的量成比例。这样，设计能够在蓄电池包装内的有限空间内填装尽可能多的电极材料的电池结构将是特别重要的。最广为人知并使用的电池结构类型是果酱卷形结构，用于圆柱形或棱柱形蓄电池。这样的结构是采用如下方法制备的：将电极活性材料涂布并碾平到用作为集电器的金属箔上，然后将其切割成具有预定宽度和长度的带形，然后用隔离膜将阴极和阳极隔开，然后将其卷成螺旋形。

这样的果酱卷形结构广泛用于制造圆柱形蓄电池。但是，该结构在螺旋的中心部分的曲率半径较小，这经常造成在电极的弯曲的表面有很大的应力，从而经常引起电极的脱落。这促进了在蓄电池反复充电和放电过程中锂金属在电极中心部分的沉积，而这会缩短蓄电池的寿命，同时降低了蓄电池的安全性。

一般地，制造薄的棱柱形蓄电池的广为所知和使用的方法，包括前述方法的将螺旋形果酱卷卷成椭圆形，并压缩该椭圆形物，然后将其插入长方形容器内。该方法没有克服前述的降低寿命和安全性的问题，反而具有由于椭圆形而造成的曲率半径降低所引起的更严重的问题。而且性能降低问题更大，因为制造一种紧密的螺旋结构从本质上来讲是不可能的。另外，果酱卷的椭圆形状与容器的长方形的差异，降低了可利用的体积的比例。当将容器考虑在内时，已知这将降低约 20% 的重量能量密度和 25% 的体积能量密度。实际上，据报道棱柱形锂离子蓄电池与圆柱形蓄电池相比，具有更低的容量密度和单位能。

最近，公开了各种专利和技术，这些专利和技术提出了解决螺旋形果酱卷型结构的问题的方法，并提供了适合于棱柱形容器的电池结构。然而，这些建议仅部分地解决了上述问题，或引起其它更难克服的问题，所以它们不是实用的解决方法。例如，U.S.P. No. 5,552,239 公开了一种方法，首先在阴极和阳极间放置并层压隔离层或聚合物电解质，然后将其切割成具有预定长度和宽度的带形，再然后逐渐将其折叠成正方形的具有阴极/隔离层/阳极层叠结构的电池。本发明的发明人尝试重复该方法，但是发现，难以制造如此使用的电池。层压的电池如此之僵硬，以至于难以折叠，并且在采用外力使其折叠时，在折叠区出现问题，因为该电池与果酱卷型电池类似，也是易碎的。

在 U.S.P. No. 5,300,373 中公开的扇形折叠方法中，在突然折叠部分的内层的压力和应力被转移至外层并分散，以至于发生扭曲和伸展，最终造成“狗骨架”（dog bone）形电池。这样，在果酱卷型结构中遇到的脱落，破裂，破碎，或折断问题，仍经常发生。还有，采取这种结构的电池本质上容易折断；因此，制造实际上可以使用的蓄电池的可能性是非常低的。

其间， U.S.P. No. 5,498,489 试图解决和改善这类在折叠部分的问题。该专利通过在折叠部分省略电极，并通过仅使用集电器和隔离层或聚合物电解质部分进行连接，提供了一种避免电极脱落的基本方法。但是，在组成这样一种电池时有困难。而且，使用了太多的集电器，并且该结构浪费了太多的电解质。因此，该结构不是非常实用的，因为其具有许多不足之处。

发明概述

本发明的一个目的是提供一种电化学元件及其制备方法，所述电化学元件包括多层堆叠的电化学电池，其中与现有技术相比，该元件容易制造，并且具有能有效利用可以获得的的空间的结构。

本发明的另一个目的是提供一种电化学元件及其制备方法，该元件可以使活性电极材料的含量达到最大，并且容易制造。

通过一种包括多层堆叠的电化学电池的电化学元件可以实现这些和其它目的，所述电化学电池是通过堆叠作为基本单位的依次具有阴极，隔离层，和阳极的全电池，和置于每个堆叠的全电池间的隔离膜而形成，其中：

所述隔离膜具有能够包覆电化学电池的单位长度，并从中间的电化学电池开始，向内折叠每个单位长度以包覆各电化学电池，连续地直至最外边的电化学电池。

另外，本发明提供制备使用全电池的电化学元件的方法，包括如下步骤：

- a) 在隔离膜一侧的第一点放置第一个全电池，在该隔离膜的纵向相当于该全电池宽度加厚度的距离处放置第二个全电池，并在相当于全电池的厚度加上随薄膜折叠而增加的膜厚度的距离，放置第三个全电池及下一个全电池；
- b) 层压 a) 步的放置好的全电池和隔离膜；和
- c) 向紧邻第一个全电池的全电池，折叠并向内卷起 b) 步的层压好的全电池和隔离膜，使每个全电池都折叠起来，从而堆叠起全电池。

另外，本发明提供一种包括多层堆叠的电化学电池的电化学元件，所述电化学电池通过堆叠：

- i) 作为基本单元的一种依次具有阴极，隔离层，阳极，另一个隔离层，和另一个阴极的双电池；和
- 5 ii) 作为基本单元的一种依次具有阳极，隔离层，阴极，另一个隔离层，和另一个阳极的双电池；

和置于每个堆叠的双电池间的隔离膜而形成，其中：

所述隔离膜具有能够包覆电化学电池的单位长度，并从中间的电化学电池开始，向内折叠每个单位长度以包覆各电化学电池，连续地直至
10 最外边的电化学电池。

还有，本发明提供制备使用双电池的电化学元件的方法，包括如下步骤：

- a) 在隔离膜的第一点放置第一个双电池，在该隔离膜的纵向相当于该双电池宽度加厚度的距离处放置第二个双电池，并在相当于双电
15 池的厚度加上随薄膜折叠而增加的膜厚度的距离，放置第三个双电池及下一个双电池；
- b) 层压 a) 步的放置好的双电池和隔离膜；和
- c) 向紧邻第一个双电池的双电池，折叠并向内卷起 b) 步的层压好的双电池和隔离膜，使每个双电池都折叠起来，从而堆叠
20 起双电池。

附图简述

图 1 显示了一种包括双侧涂布的阴极，阳极和隔离层的全电池的层状结构。

25 图 2 显示了一种电池的层状结构，其中堆叠了多个全电池，并且隔离膜置于堆叠的电池之间。

图 3 显示了一种包括多层堆叠的全电池的电池的层状结构，该电池的最外侧的全电池的最外边的电极，一侧涂布而另一侧为金属箔，隔离膜置于全电池之间。

30 图 4a 显示了一种双电池的层状结构，其中中间层是阳极，而外面

两侧为阴极。

图 4b 显示了一种双电池的层状结构，其中中间层是阴极，而外面两侧为阳极。

图 5 显示了一种电池的层状结构，其中两种类型的双电池交替堆叠，
5 在双电池之间插有隔离膜。

图 6 显示了一种电池的层状结构，包括最外侧双电池的最外边电极的一侧涂布而另一侧为金属箔的双电池，交替堆叠的两种类型的双电池，并且有隔离膜置于电池之间。

图 7 是一种蓄电池的展开图，其中全电池放置在切割过的隔离膜上，
10 然后层压，使全电池精确的排列成一行以进行堆叠。

图 8 是一种蓄电池的展开图，其中两种类型的双电池放置在切割过的隔离膜上，然后层压，使双电池精确的排列成一行以进行堆叠。

图 9 显示了本发明实施例 1 和 2 的电化学元件的循环特性。

15 优选实施方案详述

此后，将参考附图详细讨论本发明。

[功能]

本发明提供一种电池结构及其制备方法，与常规的电池相比，本发明
20 明电池更容易制备，并能更有效地利用空间。本发明提供了一种独特而简单的方式，使在棱柱形蓄电池中电极活性材料的含量最大化，同时克服了上述各种常规电池结构的各种不足。原则上，本发明没有利用螺旋形卷起或折叠所使用的纵向切割的电极，而是采用堆叠切割成预定形状的电极的方法。

本发明的电化学电池采用全电池或双电池作为基本单元堆叠而成。

25 本发明的全电池具有这样的结构，其中将层状的构成物阴极 7，阳极 8 和隔离层 15 切割成规则的形状和大小，然后如图 1 所示堆叠。所有电极使用两侧涂布电极活性材料 13 和 14 的集电器 11 和 12。这样的结构被看作是一个单元电池，堆叠该单元电池构成蓄电池。为实现这样的目的，电极和隔离膜必须彼此固定。例如，在锂可充电电池中，阴极
30 材料 14 的主要成分是锂嵌入材料，如锂锰氧化物，锂钴氧化物，锂镍

氧化物，或上述氧化物组合形成的复合氧化物，所述阴极材料涂布在阴极集电器 12 上形成阴极 8，集电器 12 是由铝，镍，或其组合物制备的金属箔。阳极材料 13 的主要成分是锂金属或锂合金，和锂嵌入材料，如碳，石油焦，活性炭，石墨，或其它碳，所述阳极材料 13 涂布在阳极集电器 11 上形成阳极 7，集电器 11 是由铜，金，镍，铜合金，或其组合物制备的金属箔。

隔离层 15 包括微孔聚乙烯薄膜，微孔聚丙烯薄膜，或由其组合制备的多层薄膜，或用作固体聚合物电解质或凝胶型聚合物电解质的聚合物膜，如聚（1，1-二氟乙烯），聚环氧乙烷，聚丙烯腈，或聚（1，1-二氟乙烯-六氟丙烯）共聚物。另外，使用一种公开于韩国专利申请 No. 99-57312 的，包括第一微孔聚合物层和聚（1，1-二氟乙烯-一氟三氯乙烯）共聚物的第二凝胶聚合物层的，用作聚合物电解质的聚合物膜也是非常有效的。隔离层 15 需要具有的一个重要特征是层压结合特性，以构成单元电池，该单元电池是一种全电池。

图 1 所示全电池 17 的单位结构，依次由阴极，隔离层和阳极构成。隔离层 15 自然地位于电池的中心。可以根据需要的数量，堆叠多个这样的单元电池，以完成具有实用容量的蓄电池。例如，图 2 显示相继堆叠 5 个全电池。如上面对隔离层 15 所做论述，聚合物隔离层，或用作聚合物电解质的具有微孔的聚合物隔离膜的插入方式是特别重要的，并且图 2 显示了本发明提供的一种方式。从位于中间的全电池开始，折叠纵向切割的隔离膜 19，使全电池 17 一个接一个地堆叠起来。这样的结构是非常高效的结构，因为在一个单元电池内无用的外侧活性涂布材料，与相邻的另一个单元电池的相对电极的活性涂布材料共享。通过用胶带 27 固定和保护，而终止隔离膜 19。另外，除胶带外，也可以采用热熔方法终止。即，通过热封而使隔离膜本身固定和结合在一起，所述热封是使热封机，热板等与隔离膜接触而完成。堆叠的全电池的数量，可以根据最终的蓄电池需要的容量而确定。

在本发明中，图 2 的结构 28 具有另一种含义。根据本发明人的经验，诸如用作聚合物电解质膜的薄膜之类的隔离膜，或聚合物隔离层，与电极间的表面是重要的。当注入液体电解质并包装后实际使用蓄电池

时，蓄电池将经历多次充电和放电循环。当表面的接触不能恒定地保持并变得不稳定时，蓄电池的性能将急剧地下降，并且蓄电池的实际容量将降低。根据蓄电池的结构，这种后果可能从开始即显示出来，或者可能随时间的流逝而暴露出来。因此，需要施加压力以恒定地保持所述表面。本发明提供一种新的电池结构及其装配方法，作为保持压力，同时基本上解决上述问题的方法。在这种范围内，图2具有另一种意义。

如在图2的结构28中可以看到的那样，堆叠作为单元电池的全电池，同时插入隔离膜19的方法，有效地利用了全电池间的电极。另外，卷起的隔离膜19的周围压力，压紧了形成所有电池的聚合物薄膜和电极之间的面。最终采用胶带27来终止，是恒定地保持这样一种压力的措施，它使表面间保持稳定和恒定的接触。

对于隔离层15和隔离膜19，可以使用不同材料或相同材料的聚合物隔离层或用作聚合物电解质的聚合物薄膜。隔离层15必须具有层压粘结特性，以构成全电池单元电池，但是隔离膜19不需要具有这样的特性，因为可以用隔离膜19卷起全电池17来进行组装。但是，对于如图2的结构28所示的，使用一种电池结构进行的另一种类型的组装来说，优选使用具有粘结特性的隔离膜19。在这方面，最合适的是使用用作聚合物电解质的聚合物薄膜作为本发明蓄电池的隔离膜19，该聚合物薄膜包括第一微孔聚合物层，和聚(1,1-二氟乙烯-一氯三氟乙烯)共聚物的第二凝胶聚合物层。当使用新的聚合物薄膜作为隔离膜19时，图2的结构28的组装方法可以有很大变化。即，每个全电池17粘结到隔离膜19上时有两种可能的取向，即上面的取向和下面的取向。如果如图2所示有5个全电池，则可以有 2^5 种组装方式。在该方法中，在隔离膜19纵向展开后，全电池可以按照 2^5 种方式中的任意一种，布置在隔离膜19的上面或下面，然后层压，接着简单地卷起和折叠。该方法的优点是组装过程的设计和布置都很容易。

图3显示的结构29，省去了图2的结构28的无用的最外侧活性电极材料，这样该结构具有最大的空间效率。当将其中一个电极双侧涂布，而另一个电极单侧涂布的全电池结构定义为另一个全电池17'时，图3的结构29采用了这样的全电池17'，使图2的结构28所示的无用的最

外侧活性电极材料仅剩下金属箔。其结果是厚度的进一步降低而未损失各电极的容量，使空间效率进一步增加。但是，当堆叠的电池数量增加时，与图 2 的结构 28 相比，空间利用率没有太大的差别。然而，在最近所讨论的非常薄层的卡型蓄电池中，图 3 的结构 29 是有效的。

5 在本发明中，当多个双电池作为单元电池堆叠时，以与上述方法相同的方式，采用空间效率高的电池结构。为实现这样的目的，分别定义如图 4a 和图 4b 所示的两种类型的双电池 23 和 24，该两种双电池都使用双侧涂布的电极。双电池 23 的阳极放置在中间，阴极放置在外边两侧，而双电池 24 的阴极放置在中间，阳极放置在外边两侧。可以使用的活性电极材料和聚合物隔离层或用作聚合物电解质的聚合物薄膜，如
10 隔离层 15，在细节上与上面在全电池中的讨论相同。图 5 的结构 30 显示了使用两种类型的双电池作为基本单元电池构建蓄电池的一种方式。当交替堆叠双电池 23 和 24，并且将前述聚合物隔离层，或隔离膜 19，如用作聚合物电解质的聚合物薄膜插入到双电池之间时，在一个双电
15 池中无用的外层活性涂布材料，自然地与相邻的另一种双电池的相反极性共享，形成一个新的全电池，这是一种非常高效率的结构。如在图 5 的结构 30 中可以看到的那样，如果隔离膜 19 连续地放置在电池之间，并且双电池交替地堆叠，则自然地形成蓄电池的极性而不会产生矛盾。蓄
20 电池最外面堆叠的双电池可以是双电池 23 或双电池 24，唯一的差别是没用的电极材料是阳极或是阴极。随着堆叠数量的增加，这种没用的电极的比例降低，并且其对具有实际厚度的电极几乎没有影响。在其它的结构 30 中，插入隔离膜 19 的方式和结构，在各细节上与所述全电池的方式和结构相同，并且在这种结构下，隔离膜 19 和胶带 27 起的作用也相同。

25 图 6 显示的结构 31，省去了图 5 的结构 30 的最外侧的活性电极材料，这样该结构具有最大的空间效率。当用底物（'）（primes（'））表示其中双电池的两个外面的电极中的仅一个仅剩下金属箔的结构时，如图 6 的结构 31 所示，将双电池 23' 作为蓄电池的最外边的双电池进行堆叠的结构（无论最外边的双电池是双电池 23' 或双电池 24'），使最
30 外边的活性电极材料的无用部分仅剩下金属箔，这样厚度进一步降低而

不会损失空间效率。这使得其优点直接与空间效率相关。当堆叠的双电池层数增加时，与图 5 的结构 30 相比，空间效率没有太大差别。但是，在薄层卡型蓄电池中，图 6 的堆叠电池的结构 31 是有效的。

对于棱柱形蓄电池，本发明提供的蓄电池结构是非常有效的。一般地，在包装时注进液体电解质。为实现这样的目的，使用铝棱柱形罐或铝层压薄片作为容器。所述液体电解质是溶解或离解在有机溶剂中的 A^+B^- 盐，其中 A^+ 包括碱金属阳离子，例如 Li^+ ， Na^+ 或 K^+ ，或其组合， B^- 包括阴离子 PF_6^- ， BF_4^- ， Cl^- ， Br^- ， I^- ， ClO_4^- ， ASF_6^- ， $CH_3CO_2^-$ ， $CF_3SO_3^-$ ， $N(CF_3SO_2)_2^-$ ， $C(CF_2SO_2)_3^-$ ，或其组合，有机溶剂包括碳酸亚丙酯 (PC)，碳酸亚乙酯 (EC)，碳酸二乙酯 (DEC)，碳酸二甲酯 (DMC)，碳酸二丙酯 (DPC)，二甲亚砜，乙腈，二甲氧基乙烷，二乙氧基乙烷，四氢呋喃，N-甲基-2-吡咯烷酮 (NMP)，碳酸甲基乙基酯 (EMC)，或 γ -丁内酯，或其组合。不象锂离子蓄电池的果酱卷，本发明蓄电池的构成物的形状与四边形容器的形状一致，以至于在容器内不存在未利用的空间。因此，蓄电池的能量密度可以大大提高，以实现具有最大活性材料空间效率的高度整合的蓄电池。

本发明的电化学元件除锂二次电池外，还可应用于各个领域，例如高级电容器 (supercapacitor)，超级电容器 (ultracapacitor)，一次电池，二次电池，燃料电池，传感器，电解装置，电化学反应器等。

下面参照实施例，更详细地阐述本发明。但是，无论如何不能将这些实施例理解为对本发明范围的限制。

实施例

实施例 1

制备其中全电池是基本单元的堆叠电池
(制备阴极)

将重量比为 95: 2.5: 2.5 的 $LiCoO_2$: 碳黑: PVDF 分散在 NMP 中，以制备浆液，然后将该浆液涂布到铝箔上。在 $130^\circ C$ 充分干燥后，碾平制备出阴极。

通过将所述浆液涂布到铝箔的两侧而制备全电池的阴极。即，该阴

极上的阴极材料涂布在铝阴极集电器的两侧。两侧涂布的阴极的厚度为 $140\mu\text{m}$ 。

(制备阳极)

将重量比为 93: 1: 6 的石墨: 乙炔黑: PVDF 分散在 NMP 中, 以
5 制备浆液, 然后将该浆液涂布到铜箔上。在 130°C 充分干燥后, 碾平制
备出阳极。

通过将所述浆液涂布到铜箔的两侧而制备全电池的阳极。即, 该阳
极上的阳极材料涂布在铜阳极集电器的两侧。两侧涂布的阳极的厚度为
 $135\mu\text{m}$ 。

10 (制备隔离层; 隔离膜; 用作聚合物电解质的聚合物膜)

制备一种多层聚合物薄膜, 其中具有微孔结构, 厚度为 $16\mu\text{m}$ 的聚
丙烯薄膜是第一聚合物隔离层, 聚(1,1-二氟乙烯-一氯三氟乙烯)共聚
物 32008 (Solvay) 是第二凝胶聚合物层。将 6g 32008 加入到 194g 丙酮
中, 并在 50°C 搅拌。1 小时后, 通过浸涂方法, 将该完全溶解的透明的
15 32008 溶液涂布到聚丙烯制成的第一聚合物隔离层上。32008 的涂布厚
度为 $1\mu\text{m}$, 最终的多层聚合物膜的厚度为 $18\mu\text{m}$ 。在此, 隔离层和隔离
膜使用相同的材料。

(制备全电池)

将阴极材料涂布在阴极集电器两侧的阴极切割成除形成突舌的区域
20 外(形成突舌的区域应该没有涂布电极材料), 大小为 $2.9\text{cm} \times 4.3\text{cm}$ 的
长方形, 将阳极材料涂布在阳极集电器两侧的阳极切割成除形成突舌的
区域外(形成突舌的区域应该没有涂布电极材料), 大小为 $3.0\text{cm} \times 4.4\text{cm}$
的长方形, 将采用上述方法制备的多层聚合物薄膜切割成 $3.1\text{cm} \times 4.5\text{cm}$
的大小, 将该薄膜置于阳极和阴极之间, 并使其通过一个 100°C 的辊筒
25 碾压机, 将各电极和隔离层层压在一起, 制备出 7 个图 1 的全电池 17。

(堆叠全电池)

将如上制备的用作聚合物电解质的聚合物薄膜 19 纵向切割后, 将 7
个全电池如图 7 所示排成一行。数字 32 所指的空隙表示全电池宽度(包
括全电池的厚度)所占据的空隙, 而数字 33, 34, 35, 36 和 37 所指的
30 缝隙表示随着隔离膜卷起而增加的厚度(包括全电池的厚度)所占据的

空隙。放置全电池的表面，如图 7 所示进行布置，以使突舌的极性一致。即，第一和第二个全电池的电极的取向，是按照阴极，然后阳极的顺序进行布置，而第三个全电池或下一个全电池的电极的取向，是按照相反的顺序进行布置。

- 5 使在上面放置了全电池的隔离膜 19 通过一个辊筒碾压机，以使全电池粘结在聚合物薄膜 19 上。

从粘结在第一点的全电池 17 开始，将聚合物薄膜卷起，然后使用胶带紧紧地固定和保护。

(制备蓄电池)

- 10 将如上制备的全电池堆叠的蓄电池放置在铝薄片包装内。然后注进液体电解质并包装，所述液体电解质包括 1M LiPF_6 的 EC/EMC (重量比为 1: 2) 溶液。

(评价)

- 15 采用充电和放电试验，所述蓄电池的循环特性的评价结果示于图 9。参考数字 100 显示了制备的蓄电池的循环特性，其中在第一次和第二次的充电和放电量为 0.2C，然后从第三次开始，充电 0.5C/放电 1.0C，从该次开始，结果图示于曲线上。

实施例 2

制备其中双电池是基本单元的堆叠电池

- 20 (制备阴极)

按照上述实施例 1 的同样方法，制备各阴极。

通过将所述浆液涂布到铝箔的两侧而制备双电池的阴极。即，该阴极上的阴极材料涂布在铝阴极集电器的两侧。两侧涂布的阴极的厚度为 140 μm 。

- 25 (制备阳极)

按照上述实施例 1 的同样方法，制备各阳极。

通过将所述浆液涂布到铜箔的两侧而制备双电池的阳极。即，该阳极上的阳极材料涂布在铜阳极集电器的两侧。两侧涂布的阳极的厚度为 135 μm 。

- 30 (制备隔离层；隔离膜；用作聚合物电解质的聚合物膜)

按照实施例 1 相同的方式，制备隔离层，隔离膜，和用作聚合物电解质的聚合物膜。

(制备双电池)

5 将前述阴极材料涂布在阴极集电器两侧的阴极切割成除形成突舌的区域外，大小为 $2.9\text{cm} \times 4.3\text{cm}$ 的长方形。将阳极材料涂布在阳极集电器两侧的阳极切割成除形成突舌的区域外，大小为 $3.0\text{cm} \times 4.4\text{cm}$ 的长方形。

10 将两侧涂布的阳极放置在中间，在其双侧外边放置两侧涂布的阴极，将切割成 $3.1\text{cm} \times 4.5\text{cm}$ 的大小的采用上述方法制备的多层聚合物薄膜置于各阳极和各阴极之间，然后使其通过一个 100°C 的辊筒碾压机，将电极和隔离层层压在一起，制备出 4 个图 4a 的双电池 23。将两侧涂布的阴极放置在中间，在其双侧外边放置两侧涂布的阳极，将切割成 $3.1\text{cm} \times 4.5\text{cm}$ 的大小的采用上述方法制备的多层聚合物薄膜置于各阳极和各阴极之间，然后使其通过一个 100°C 的辊筒碾压机，将电极和隔离层层压在一起，制备出其它的双电池，即 3 个图 4b 的双电池 24。

(堆叠双电池)

20 所有电极和聚合物薄膜的层压过程，在一个 100°C 的辊筒碾压机上进行。将如上制备的用作聚合物电解质的聚合物薄膜 19 纵向切割后，将 7 个全电池如图 8 所示排成一行，中间有一定的空隙。参考数字 38 所指的空隙表示双电池宽度（包括厚度）所占据的空隙，而参考数字 39，40，41，42 和 43 所指的缝隙表示随着隔离膜卷起而增加的厚度所占据的空隙。放置双电池的表面，如图 8 所示进行布置，以使突舌的极性一致。即，第一和第二个双电池的电极的取向，是按照阴极，然后阳极的顺序进行布置，而第三个双电池或下一个双电池的电极的取向，是按照相反的顺序进行布置，使双电池布置的顺序为 24，23，23，24，24，23 和 23。

使在上面放置了双电池的聚合物薄膜 19 通过一个辊筒碾压机，以使双电池粘结在聚合物薄膜 19 上。

30 从粘结在第一点的双电池 17 开始，将聚合物薄膜卷起，然后使用胶带紧紧地固定和保护。

(制备蓄电池)

将如上制备的堆叠的双电池蓄电池放置在铝薄片包装内。然后注进液体电解质并包装，所述液体电解质包括 1M LiPF_6 的 EC/EMC (重量比为 1: 2) 溶液。

5 (评价)

采用充电和放电试验，所述蓄电池的循环特性的评价结果示于图 9。参考数字 101 显示了制备的蓄电池的循环特性，其中在第一次和第二次，充电和放电量为 0.2C，然后从第三次开始，充电 0.5C/放电 1.0C，从该次开始，结果图示于曲线上。

10 本发明的采用全电池或双电池作为单元电池多层堆叠的电化学元件容易制造，具有能够有效利用可获得的的空间的结构，并且可以特别使活性电极材料的含量最大化，从而实现了高度整合的蓄电池。

说明书附图

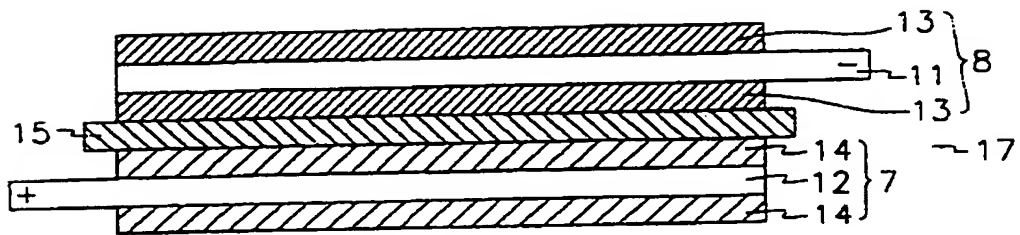


图 1

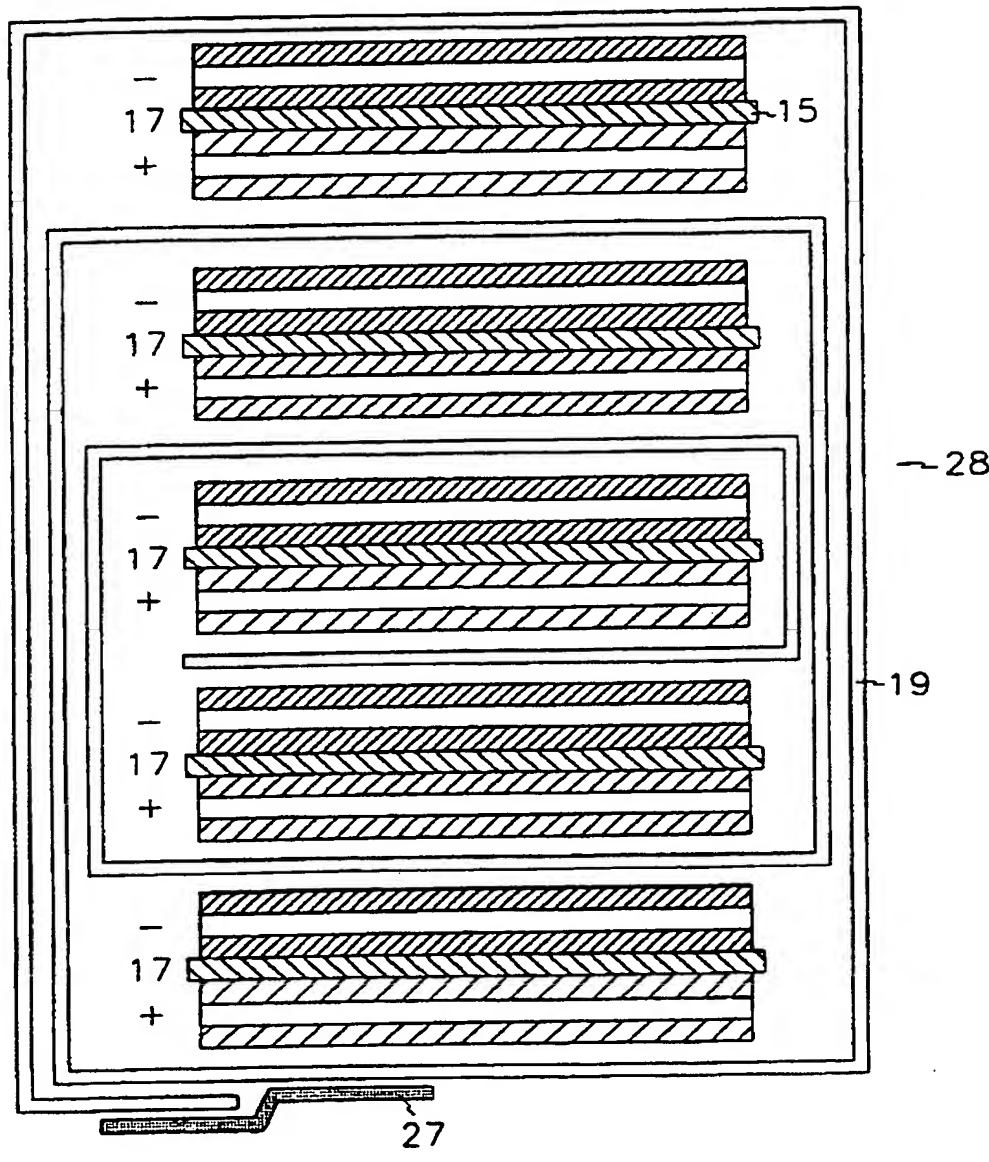


图 2

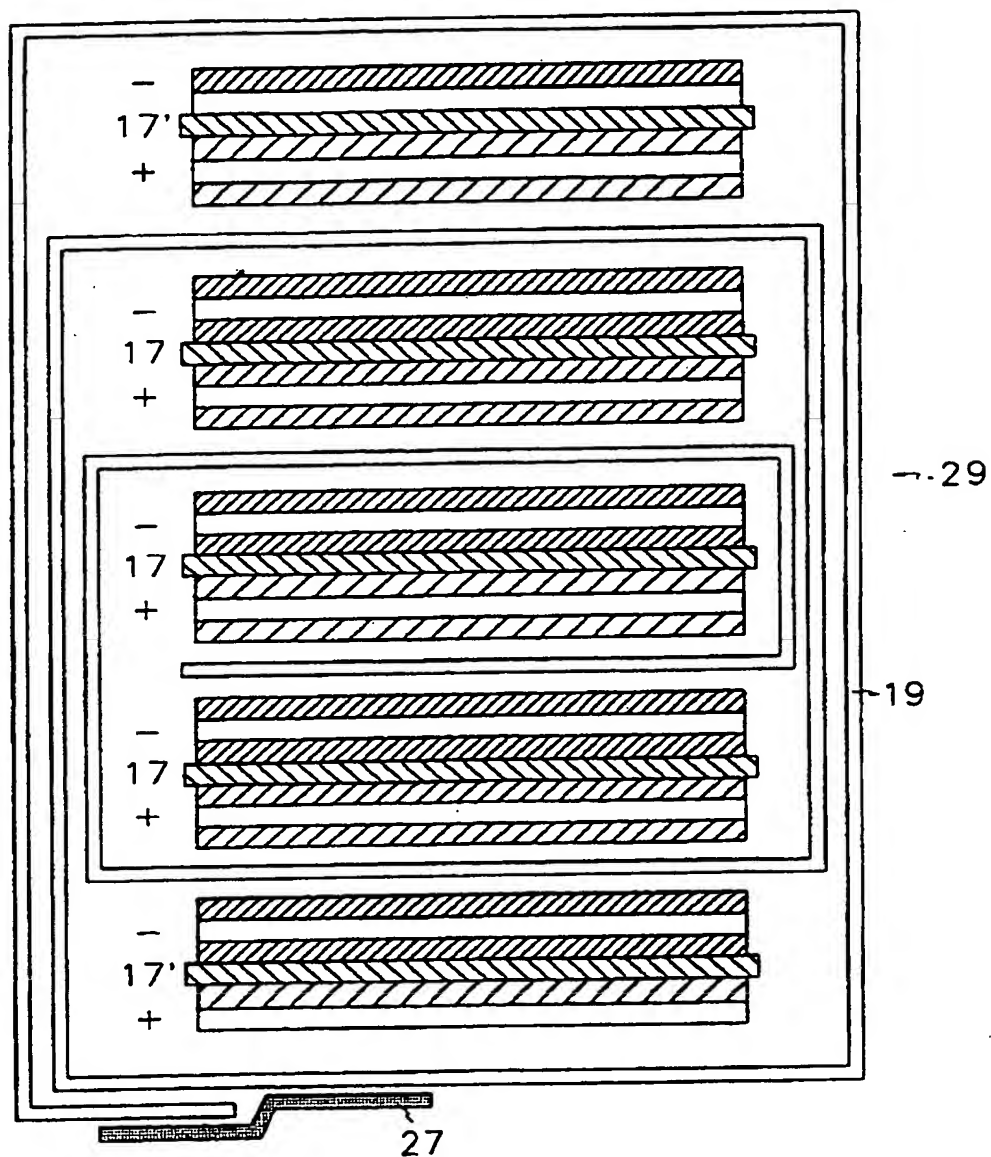


图 3

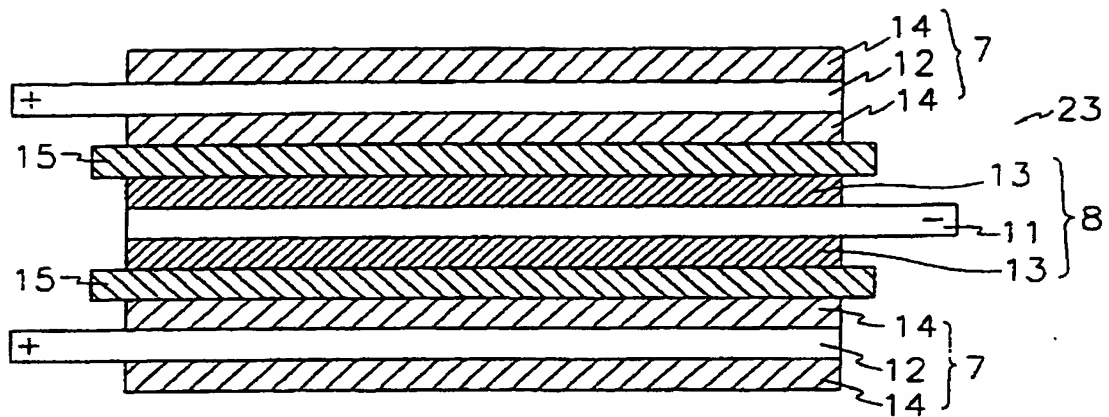


图 4A

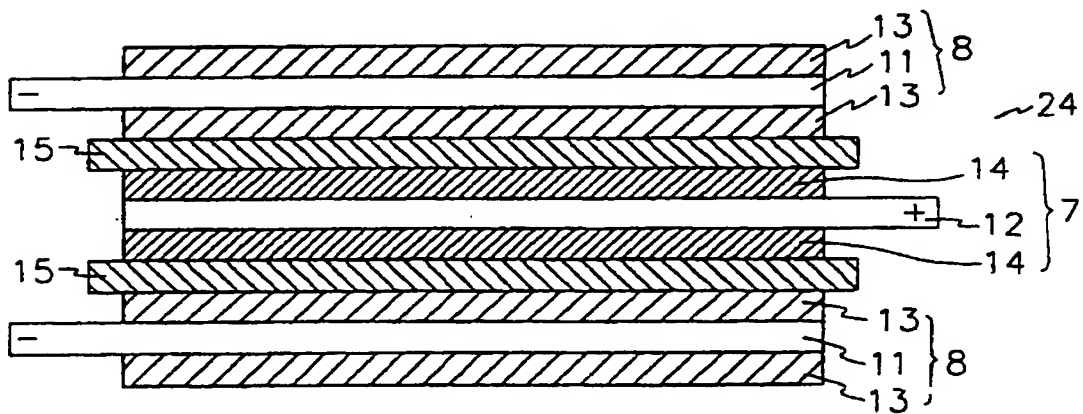


图 4B

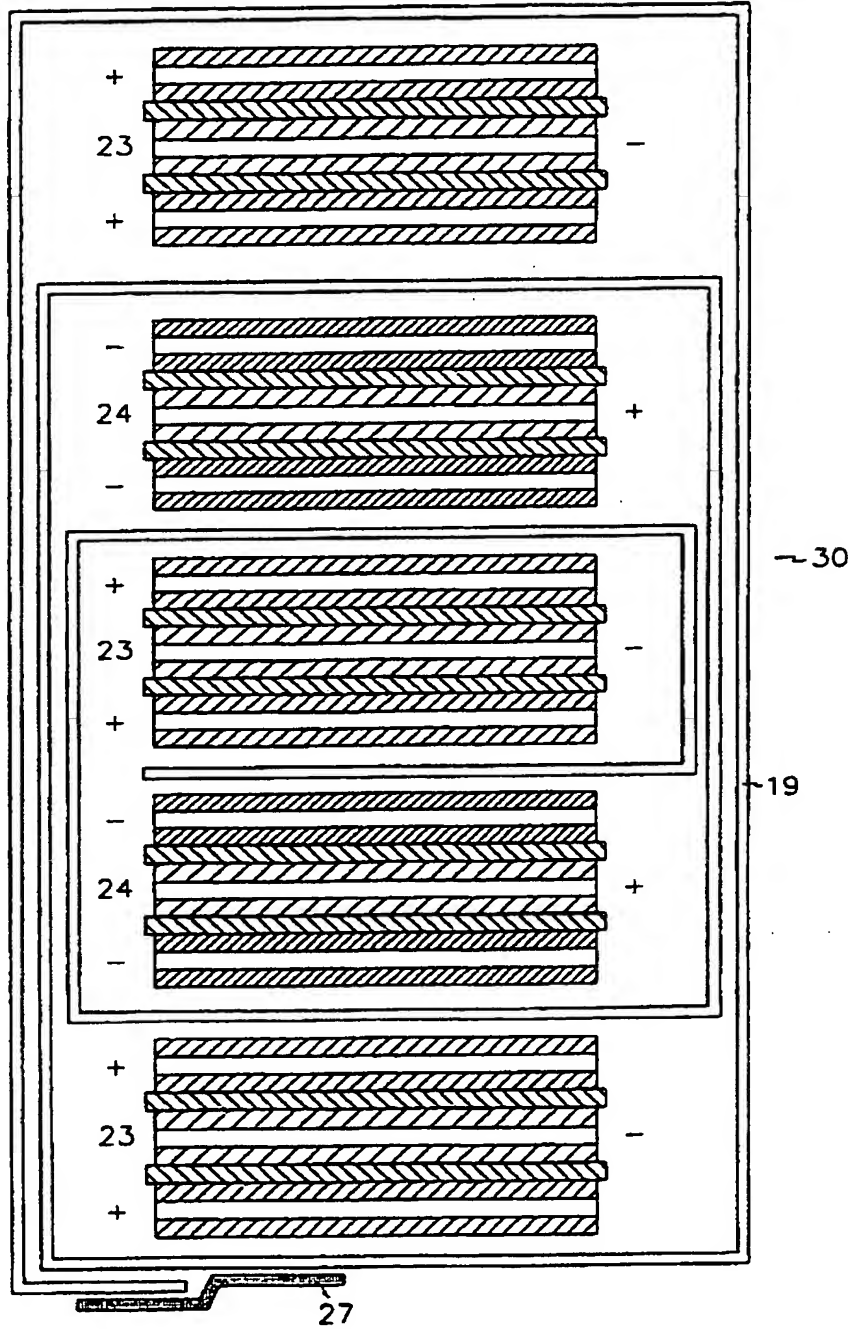


图 5

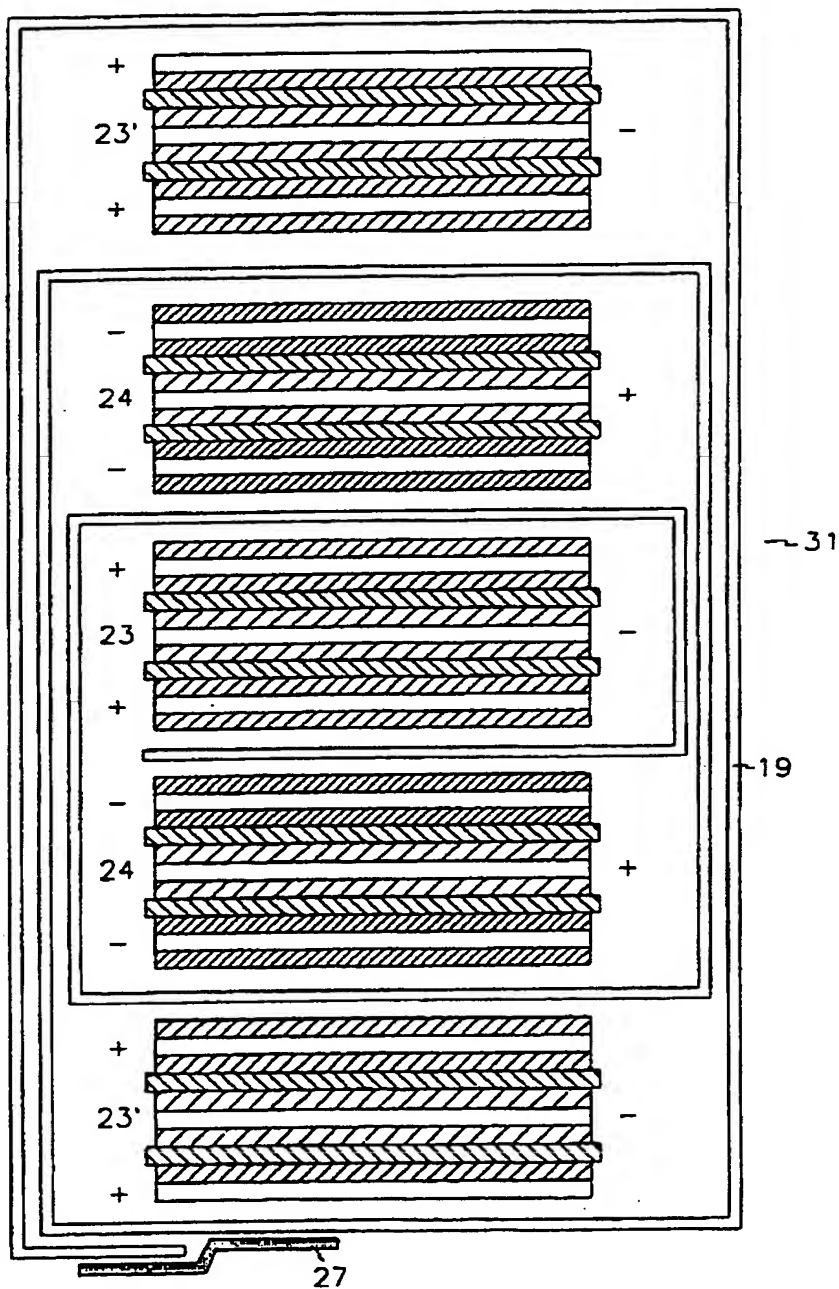


图 6

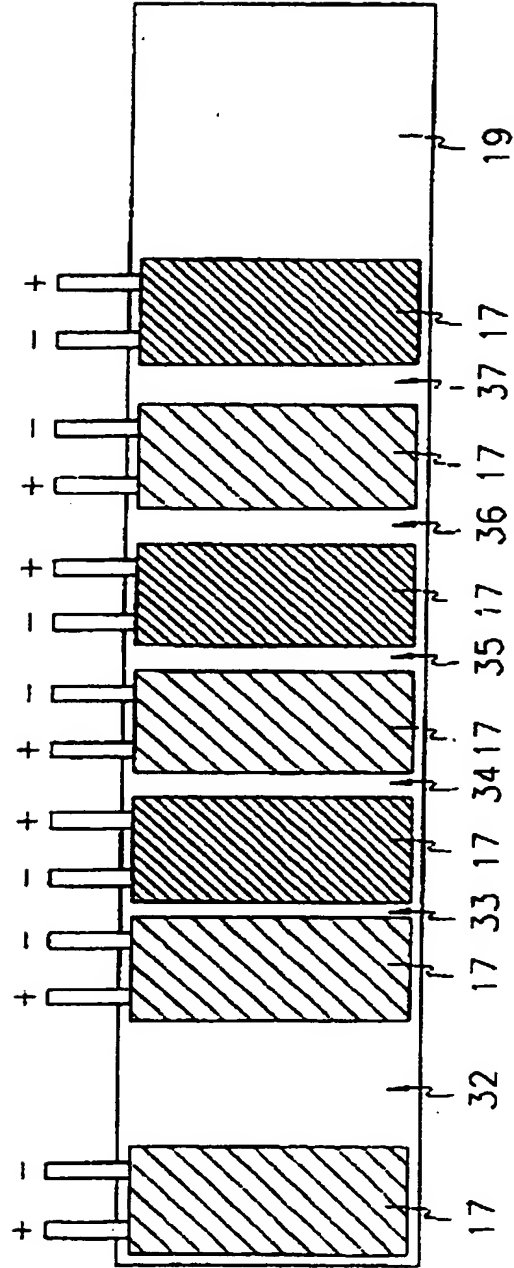


图 7

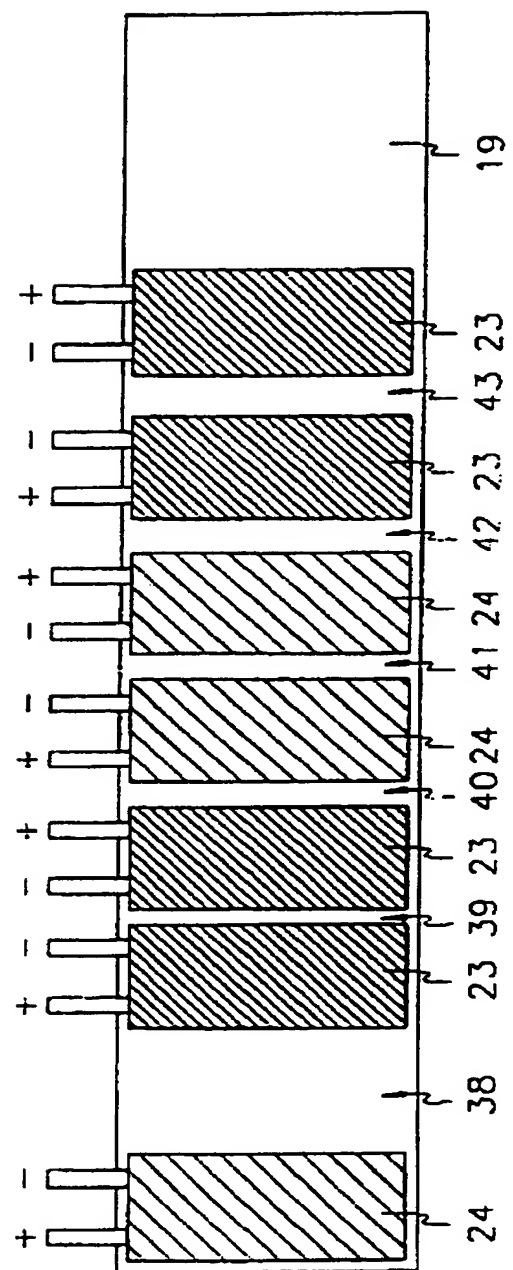


图 8

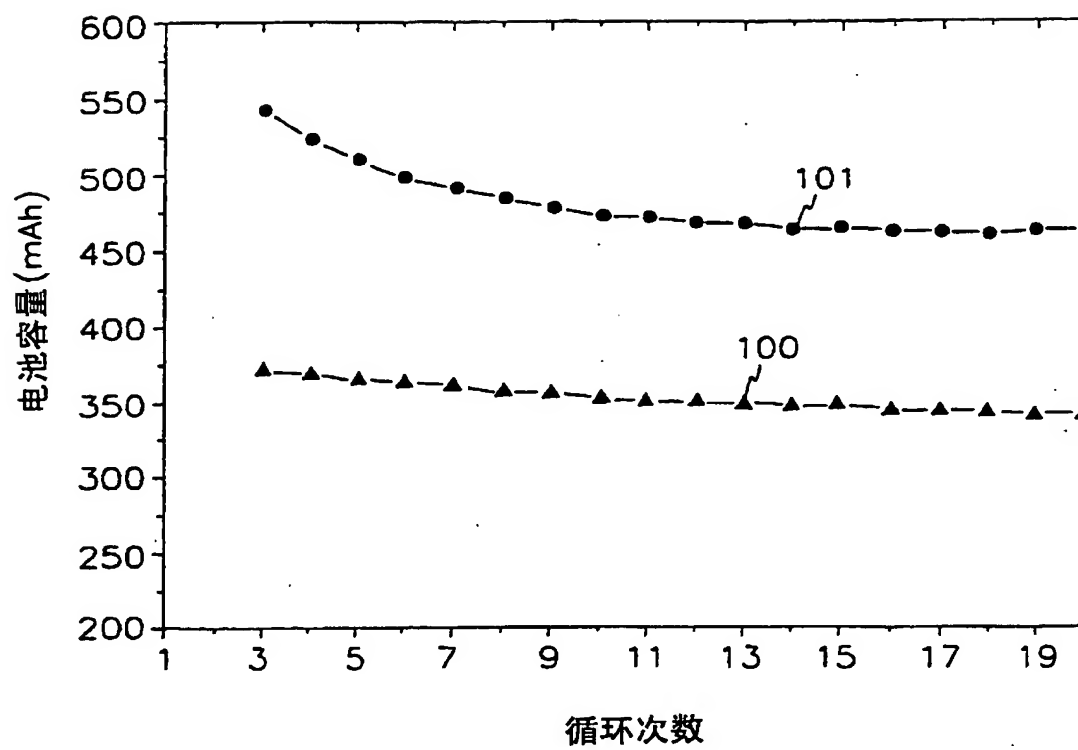


图 9

THIS PAGE BLANK (USPTO)